

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant : Masayuki Tobita et al. Art Unit : Unknown
Serial No. : Examiner : Unknown
Filed : July 21, 2003
Title : THERMALLY CONDUCTIVE POLYMER MOLDED ARTICLE AND
METHOD FOR PRODUCING THE SAME

MAIL STOP PATENT APPLICATION

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT UNDER 35 USC § 119

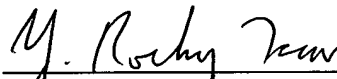
Applicants hereby confirm their claim of priority under 35 USC § 119 from Japan
Application No. 2002-213051 filed July 22, 2002. A certified copy of the application from
which priority is claimed is submitted herewith.

Please apply any charges or credits to Deposit Account No. 06-1050.

Respectfully submitted,

Date: _____

7-21-03


Y. Rocky Tsao
Reg. No. 34,053

Fish & Richardson P.C.
225 Franklin Street
Boston, MA 02110-2804
Telephone: (617) 542-5070
Facsimile: (617) 542-8906

20695135.doc

CERTIFICATE OF MAILING BY EXPRESS MAIL

Express Mail Label No. EV331002781US

July 21, 2003

Date of Deposit

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2002年 7月22日

出 願 番 号

Application Number:

特願2002-213051

[ST.10/C]:

[JP2002-213051]

出 願 人

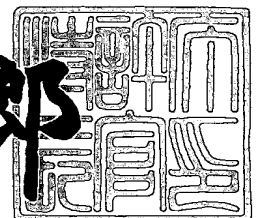
Applicant(s):

ポリマテック株式会社

2003年 6月17日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田 信一郎



出証番号 出証特2003-3047233

【書類名】 特許願

【整理番号】 PY20021356

【提出日】 平成14年 7月22日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01L 23/00
C09K 19/02

【発明者】

【住所又は居所】 東京都北区田端5丁目10番5号 ポリマテック 株式会社 R&Dセンター 内

【氏名】 飛田 雅之

【発明者】

【住所又は居所】 東京都北区田端5丁目10番5号 ポリマテック 株式会社 R&Dセンター 内

【氏名】 下山 直之

【発明者】

【住所又は居所】 東京都北区田端5丁目10番5号 ポリマテック 株式会社 R&Dセンター 内

【氏名】 石垣 司

【発明者】

【住所又は居所】 東京都北区田端5丁目10番5号 ポリマテック 株式会社 R&Dセンター 内

【氏名】 木村 亨

【特許出願人】

【識別番号】 000237020

【氏名又は名称】 ポリマテック 株式会社

【代理人】

【識別番号】 100068755

【弁理士】

【氏名又は名称】 恩田 博宣

【選任した代理人】

【識別番号】 100105957

【弁理士】

【氏名又は名称】 恩田 誠

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 002956

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9911144

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 熱伝導性高分子成形体及びその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 液晶性高分子 1 0 0 重量部に対して、前記液晶性高分子の熱伝導率 (λ_1) よりも、高い熱伝導率 (λ_2) を少なくとも一方向に有する熱伝導性充填剤 5 ~ 8 0 0 重量部を配合してなる熱伝導性組成物を成形してなり、前記熱伝導性充填剤は磁気異方性を有し、前記液晶性高分子及び熱伝導性充填剤が熱伝導方向に磁場配向されていることを特徴とする熱伝導性高分子成形体。

【請求項 2】 前記液晶性高分子が (A) 熱液晶性全芳香族ポリエステル及び (B) 熱液晶性全芳香族ポリエステルアミドのうち少なくとも一種であることを特徴とする請求項 1 に記載の熱伝導性高分子成形体。

【請求項 3】 前記熱伝導性充填剤が、炭素繊維、グラファイト、窒化ホウ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、炭化ケイ素及び酸化アルミニウムより選ばれる少なくとも一種である請求項 1 又は請求項 2 に記載の熱伝導性高分子成形体。

【請求項 4】 前記熱伝導性充填剤は、炭素繊維及びグラファイトより選ばれる少なくとも一種であって、前記炭素繊維及びグラファイトにおける少なくとも一方向の熱伝導率が 2 0 0 ~ 2 0 0 0 W / (m · K) であることを特徴とする請求項 1 から請求項 3 のいずれか一項に記載の熱伝導性高分子成形体。

【請求項 5】 シート状に成形され、厚さ方向に前記液晶性高分子及び熱伝導性充填剤が磁場配向されている請求項 1 から請求項 4 のいずれか一項に記載の熱伝導性高分子成形体。

【請求項 6】 請求項 1 から請求項 5 のいずれか一項に記載の熱伝導性高分子成形体の製造方法において、前記熱伝導性組成物を成形する際、前記液晶性高分子を液晶状態に相転移して、該液晶性高分子に磁場を印加することによって液晶性高分子及び前記熱伝導性充填剤を熱伝導方向に配向させた後、固体状態に相転移させたことを特徴とする熱伝導性高分子成形体の製造方法。

【請求項 7】 請求項 1 から請求項 5 のいずれか一項に記載の熱伝導性高分子成形体の製造方法において、前記熱伝導性組成物をシート状に成形し、前記液

晶性高分子を液晶状態に相転移して、該液晶性高分子に磁場を印加することによって液晶性高分子及び前記熱伝導性充填剤を熱伝導方向に配向させた後、固体状態に相転移させたことを特徴とする熱伝導性高分子成形体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、熱伝導性高分子成形体及びその製造方法に関するものである。さらに詳しくは、優れた熱伝導性を発揮することができる熱伝導性高分子成形体及びその製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

近年、電子機器においては高性能化、小型化、軽量化等に伴って半導体パッケージの高密度実装化、LSIの高集積化及び高速化等が行われている。これらに伴って、各種の電子部品において発生する熱が増大するため、電子部品から熱を効果的に外部へ放散させる熱対策が非常に重要な課題になっている。このような熱対策として、プリント配線基板、半導体パッケージ、筐体、ヒートパイプ、放熱板、熱拡散板等の放熱部材には、金属、セラミックス、高分子組成物等の放熱材料からなる熱伝導性成形体が適用されている。

【0003】

これらの放熱部材の中でも、高分子組成物からなる熱伝導性成形体（以下、熱伝導性高分子成形体という。）は、任意の形状に成形加工し易く、軽量であることから広く利用されている。

【0004】

熱伝導性高分子成形体を構成する高分子組成物は、樹脂、ゴム等の高分子マトリックス材料中に、熱伝導率の高い熱伝導性充填剤を配合したものが知られている。熱伝導性充填剤としては、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、石英等の金属酸化物、窒化ホウ素、窒化アルミニウム等の金属窒化物、炭化ケイ素等の金属炭化物、水酸化アルミニウム等の金属水酸化物、金、銀、銅等の金属、炭素繊維、黒鉛等が用いられている。

【 0 0 0 5 】

一方、電子部品の実装工程及び使用時の高い温度環境でも変形が生じない耐熱性が要求される用途には、マトリックスの樹脂としては成形加工性が良好で耐熱性に優れる熱液晶性高分子を用いた高分子組成物及び熱伝導性高分子成形体が提唱されている。例えば、特開昭 6 2 - 1 0 0 5 7 7 号公報には、特定の熱伝導性充填剤と熱液晶性高分子を含む熱伝導性に優れる組成物が開示されている。また、特開平 5 - 2 7 1 4 6 5 号公報には、熱伝導性充填剤として 5 0 ~ 9 0 重量%のジルコンと 5 0 ~ 1 0 重量%の熱液晶性高分子を含む熱伝導性に優れる電気絶縁性組成物が開示されている。さらに、特表 2 0 0 1 - 5 2 3 8 9 2 号公報には、2 0 ~ 8 0 重量%の炭素繊維等の熱伝導性充填剤と 8 0 ~ 2 0 重量%の熱液晶性高分子等を含む組成物が開示されている。

【 0 0 0 6 】

【発明が解決しようとする課題】

ところが、最近の電子部品はその高性能化に伴って発熱量が増大しているため、上記従来の技術における熱伝導性高分子成形体では熱伝導性が不十分となっている。

【 0 0 0 7 】

本発明は、上記のような従来技術に存在する問題点に着目してなされたものである。その目的とするところは、優れた熱伝導性を発揮することができる熱伝導性高分子成形体及びその製造方法を提供することにある。

【 0 0 0 8 】

【課題を解決するための手段】

上記の目的を達成するために請求項 1 に記載の発明の熱伝導性高分子成形体では、液晶性高分子 1 0 0 重量部に対して、前記液晶性高分子の熱伝導率 (λ_1) よりも、高い熱伝導率 (λ_2) を少なくとも一方向に有する熱伝導性充填剤 5 ~ 8 0 0 重量部を配合してなる熱伝導性組成物を成形してなり、前記熱伝導性充填剤は磁気異方性を有し、前記液晶性高分子及び熱伝導性充填剤が熱伝導方向に磁場配向されているものである。

【 0 0 0 9 】

請求項 2 に記載の発明の熱伝導性高分子成形体では、請求項 1 に記載の発明において、前記液晶性高分子が（A）熱液晶性全芳香族ポリエステル及び（B）熱液晶性全芳香族ポリエステルアミドのうち少なくとも一種であるものである。

【 0 0 1 0 】

請求項 3 に記載の発明の熱伝導性高分子成形体では、請求項 1 又は請求項 2 に記載の発明において、前記熱伝導性充填剤が、炭素繊維、グラファイト、窒化ホウ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、炭化ケイ素及び酸化アルミニウムより選ばれる少なくとも一種であるものである。

【 0 0 1 1 】

請求項 4 に記載の発明の熱伝導性高分子成形体では、請求項 1 から請求項 3 のいずれか一項に記載の発明において、前記熱伝導性充填剤は、炭素繊維及びグラファイトより選ばれる少なくとも一種であって、前記炭素繊維及びグラファイトにおける少なくとも一方向の熱伝導率が $200 \sim 2000 \text{ W} / (\text{m} \cdot \text{K})$ であるものである。

【 0 0 1 2 】

請求項 5 に記載の発明の熱伝導性高分子成形体では、請求項 1 から請求項 4 のいずれか一項に記載の発明において、シート状に成形され、厚さ方向に前記液晶性高分子及び熱伝導性充填剤が磁場配向されているものである。

【 0 0 1 3 】

請求項 6 に記載の発明の熱伝導性高分子成形体の製造方法では、請求項 1 から請求項 5 のいずれか一項に記載の熱伝導性高分子成形体の製造方法において、前記熱伝導性組成物を成形する際、前記液晶性高分子を液晶状態に相転移して、該液晶性高分子に磁場を印加することによって液晶性高分子及び前記熱伝導性充填剤を熱伝導方向に配向させた後、固体状態に相転移させたものである。

【 0 0 1 4 】

請求項 7 に記載の発明の熱伝導性高分子成形体の製造方法では、請求項 1 から請求項 5 のいずれか一項に記載の熱伝導性高分子成形体の製造方法において、前記熱伝導性組成物をシート状に成形し、前記液晶性高分子を液晶状態に相転移して、該液晶性高分子に磁場を印加することによって液晶性高分子及び前記熱伝導

性充填剤を熱伝導方向に配向させた後、固体状態に相転移させたものである。

【0015】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施形態について詳細に説明する。

本実施形態における熱伝導性高分子成形体は、液晶性高分子100重量部に対して、熱伝導性充填剤5～800重量部を配合してなる熱伝導性組成物から形成される。熱伝導性充填剤は、液晶性高分子の熱伝導率(λ_1)よりも、高い熱伝導率(λ_2)を少なくとも一方向に有している。また、熱伝導性充填剤は磁気異方性を有するものである。そして、液晶性高分子及び熱伝導性充填剤は、得られる熱伝導性高分子成形体の熱伝導方向に磁場配向されている。

【0016】

まず、熱伝導性組成物について説明する。

液晶性高分子は、熱伝導性組成物から得られる熱伝導性高分子成形体の熱伝導性を向上させるために配合される。液晶性高分子の具体例としては、熱液晶性高分子(サーモトロピック液晶性高分子)及びライオトロピック液晶性高分子が挙げられる。熱液晶性高分子は加熱溶融すると、ある温度範囲において光学的異方性溶融相を示す液晶状態となる高分子である。一方、ライオトロピック液晶性高分子は溶媒に溶解すると、ある濃度範囲において光学的異方性を示す液晶状態となる液晶性高分子である。これらの液晶性高分子の中でも、熱可塑性を有し、成形加工し易いことから熱液晶性高分子が好ましい。これらの液晶性高分子は、液晶状態において高分子の分子鎖が規則的に配列することによって光学的異方性を示すものであって、光学的異方性は直交偏光子を利用した通常の偏光検査法によって確認することができる。

【0017】

熱液晶性高分子の具体例としては、熱液晶性ポリエステル、熱液晶性ポリエステルアミド、熱液晶性ポリエステルエーテル、熱液晶性ポリエステルカーボネート、熱液晶性ポリエステルイミド等が挙げられる。また、熱液晶性高分子の分類としては、主鎖型の熱液晶性高分子、側鎖型の熱液晶性高分子及び複合型の熱液晶性高分子等が挙げられる。主鎖型の熱液晶性高分子は、液晶構造発現のもとと

なるメソゲン基が主鎖に入ったものいい、ポリエステルのコポリマー（ポリエチレンテレフタレートとヒドロキシ安息香酸のコポリマー等）、ヒドロキシナフトエ酸とヒドロキシ安息香酸のコポリマー等が挙げられる。側鎖型の熱液晶性高分子は、メソゲン基が側鎖に入ったものをいい、エチレン系やシロキサン系等の主鎖にメソゲン基が側鎖として連なった構造を繰り返し単位として含むものである。複合型の熱液晶性高分子は、主鎖型と側鎖型が複合されたものをいう。

【 0 0 1 8 】

熱液晶性ポリエステルとしては、例えば熱液晶性全芳香族ポリエステル（A）が挙げられる。熱液晶性全芳香族ポリエステルとは、一般に光学的異方性溶融相を形成するセグメント部分が芳香族カルボン酸と芳香族アルコールとのエステルで構成されたものをいう。本実施形態における熱液晶性全芳香族ポリエステルは、光学的異方性溶融相を形成しないセグメント部分を脂肪族又は脂環族の酸とアルコールによるエステルで構成することも可能である。また、本実施形態における熱液晶性全芳香族ポリエステルは、光学的異方性溶融相を形成するセグメント部分を脂肪族又は脂環族の酸とアルコールによるエステルで構成し、光学的異方性溶融相を形成しないセグメント部分を芳香族カルボン酸と芳香族アルコールとのエステルで構成することも可能である。さらに、脂肪族又は脂環族の酸と、芳香族アルコールとによるエステルで構成することも可能である。加えて、脂肪族又は脂環族のアルコールと、芳香族カルボン酸とによるエステルで構成することも可能である。

【 0 0 1 9 】

熱液晶性全芳香族ポリエステルの構成成分としては、（a）芳香族ジカルボン酸系化合物及び脂環族ジカルボン酸系化合物の少なくとも一種、（b）芳香族ヒドロキシカルボン酸系化合物の少なくとも一種、（c）芳香族ジオール系、脂環族ジオール系及び脂環族ジオール系化合物の少なくとも一種、（d）芳香族ジチオール系、芳香族チオフェノール系及び芳香族チオールカルボン酸系化合物の少なくとも一種、（e）芳香族ヒドロキシアミン及び芳香族ジアミン系化合物の少なくとも一種、等が挙げられる。これらの成分（a）～（e）は単独で構成してもよいが、多くは（a）及び（c）、（a）及び（d）、（a）、（b）及び（

c)、(a)、(b)及び(e)、(a)、(b)、(c)及び(e)等のよう
に組み合わせて構成される。

【0020】

芳香族ジカルボン酸系化合物(a)としては、芳香族ジカルボン酸及びその誘導体が挙げられる。芳香族ジカルボン酸としては、テレフタル酸、4,4'-ジフェニルジカルボン酸、4,4'-トリフェニルジカルボン酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、1,4-ナフタレンジカルボン酸、2,7-ナフタレンジカルボン酸、ジフェニルエーテル-4,4'-ジカルボン酸、ジフェノキシエタン-4,4'-ジカルボン酸、ジフェノキシブタン-4,4'-ジカルボン酸、ジフェニルエタン-4,4'-ジカルボン酸、イソフタル酸、ジフェニルエーテル-3,3'-ジカルボン酸、ジフェノキシエタン-3,3'-ジカルボン酸、ジフェニルエタン-3,3'-ジカルボン酸、1,6-ナフタレンジカルボン酸等が挙げられる。芳香族ジカルボン酸誘導体は、芳香族ジカルボン酸にアルキル、アルコキシ及びハロゲン等の置換基を導入したものであって、クロロテレフタル酸、ジクロロテレフタル酸、ブロモテレフタル酸、メチルテレフタル酸、ジメチルテレフタル酸、エチルテレフタル酸、メトキシテレフタル酸、エトキシテレフタル酸等が挙げられる。

【0021】

脂環族ジカルボン酸系化合物(a)としては、脂環族ジカルボン酸及びその誘導体が挙げられる。脂環族ジカルボン酸としては、トランス-1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、シス-1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、1,3-シクロヘキサンジカルボン酸等が挙げられる。脂環族ジカルボン酸誘導体は、脂環族ジカルボン酸にアルキル、アルコキシ、ハロゲン等の置換基を導入したものであって、トランス-1,4-(2-メチル)シクロヘキサンジカルボン酸トランス-1,4-(2-クロル)シクロヘキサンジカルボン酸等が挙げられる。

【0022】

芳香族ヒドロキシカルボン酸系化合物(b)としては、芳香族ヒドロキシカルボン酸及びその誘導体が挙げられる。芳香族ヒドロキシカルボン酸としては、4-ヒドロキシ安息香酸、3-ヒドロキシ安息香酸、6-ヒドロキシ-2-ナフト

エ酸、6-ヒドロキシ-1-ナフトエ酸等の芳香族ヒドロキシカルボン酸が挙げられる。芳香族ヒドロキシカルボン酸誘導体は、芳香族ヒドロキシカルボン酸にアルキル、アルコキシ、ハロゲン等の置換基を導入したものであって、3-メチル-4-ヒドロキシ安息香酸、3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシ安息香酸、2, 6-ジメチル-4-ヒドロキシ安息香酸、3-メトキシ-4-ヒドロキシ安息香酸、3, 5-ジメトキシ-4-ヒドロキシ安息香酸、6-ヒドロキシ-5-メチル-2-ナフトエ酸、6-ヒドロキシ-5-メトキシ-2-ナフトエ酸、2-クロロ-4-ヒドロキシ安息香酸、3-クロロ-4-ヒドロキシ安息香酸、2, 3-ジクロロ-4-ヒドロキシ安息香酸、3, 5-ジクロロ-4-ヒドロキシ安息香酸、2, 5-ジクロロ-4-ヒドロキシ安息香酸、3-ブロモ-4-ヒドロキシ安息香酸、6-ヒドロキシ-5-クロロ-2-ナフトエ酸、6-ヒドロキシ-7-クロロ-2-ナフトエ酸、6-ヒドロキシ-5, 7-ジクロロ-2-ナフトエ酸等が挙げられる。

【0023】

芳香族ジオール系化合物(c)としては、芳香族ジオール及びその誘導体が挙げられる。芳香族ジオールとしては、4, 4'-ジヒドロキシジフェニル、3, 3'-ジヒドロキシジフェニル、4, 4'-ジヒドロキシトリフェニル、ハイドロキノン、レゾルシン、2, 6-ナフタレンジオール、4, 4'-ジヒドロキシジフェニルエーテル、ビス(4-ヒドロキシフェノキシ)エタン、3, 3'-ジヒドロキシジフェニルエーテル、1, 6-ナフタレンジオール、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン等が挙げられる。芳香族ジオール誘導体は、芳香族ジオールにアルキル、アルコキシ、ハロゲン等の置換基を導入したものであって、クロロハイドロキノン、メチルハイドロキノン、t-ブチルハイドロキノン、フェニルハイドロキノン、メトキシハイドロキノン、フェノキシハイドロキノン、4-クロロレゾルシン、4-メチルレゾルシン等が挙げられる。

【0024】

脂環族ジオール系化合物(c)としては、脂環族ジオール及びその誘導体が挙げられる。脂環族ジオールとしては、トランス-1, 4-シクロヘキサンジオー

ル、シス-1, 4-シクロヘキサンジオール、トランス-1, 4-シクロヘキサンジメタノール、シス-1, 4-シクロヘキサンジメタノール、トランス-1, 3-シクロヘキサンジオール、シス-1, 2-シクロヘキサンジオール、トランス-1, 3-シクロヘキサンジメタノール等が挙げられる。脂環族ジオール誘導体は、脂環族ジオールにアルキル、アルコキシ、ハロゲン等の置換基を導入したものであって、トランス-1, 4-(2-メチル)シクロヘキサンジオール、トランス-1, 4-(2-クロロ)シクロヘキサンジオール等が挙げられる。

【0025】

脂肪族ジオール系化合物(c)としては、エチレングリコール、1, 3-プロパンジオール、1, 4-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール等の直鎖状又は分岐状脂肪族ジオールが挙げられる。

【0026】

芳香族ジチオール系化合物(d)としては、ベンゼン-1, 4-ジチオール、ベンゼン-1, 3-ジチオール、2, 6-ナフタレンジチオール、2, 7-ナフタレンジチオール等が挙げられる。

【0027】

芳香族チオフエノール系化合物(d)としては、4-メルカプトフェノール、3-メルカプトフェノール、6-メルカプトフェノール等が挙げられる。

芳香族チオールカルボン酸系化合物(d)としては、4-メルカプト安息香酸、3-メルカプト安息香酸、6-メルカプト-2-ナフトエ酸、7-メルカプト-2-ナフトエ酸等が挙げられる。

【0028】

芳香族ヒドロキシアミン系化合物(e)としては、4-アミノフェノール、N-メチル-4-アミノフェノール、3-アミノフェノール、3-メチル-4-アミノフェノール、2-クロロ-4-アミノフェノール、4-アミノ-1-ナフトール、4-アミノ-4'-ヒドロキシジフェニル、4-アミノ-4'-ヒドロキシジフェニルエーテル、4-アミノ-4'-ヒドロキシジフェニルメタン、4-アミノ-4'-ヒドロキシジフェニルスルフィド、4, 4'-エチレンジアニリン等が挙げられる。

【0029】

芳香族ジアミン系化合物(e)としては、1,4-フェニレンジアミン、N-メチル-1,4-フェニレンジアミン、N,N'-ジメチル-1,4-フェニレンジアミン、4,4'-ジアミノフェニルスルフィド(チオジアニリン)、4,4'-ジアミノジフェニルスルホン、2,5-ジアミノトルエン、4,4'-ジアミノジフェノキシエタン、4,4'-ジアミノジフェニルメタン(メチレンジアニリン)、4,4'-ジアミノジフェニルエーテル(オキシジアニリン)等が挙げられる。

【0030】

熱液晶性ポリエステルアミドとしては、例えば熱液晶性全芳香族ポリエステルアミド(B)が挙げられる。熱液晶性全芳香族ポリエステルアミドとしては、芳香族ジアミン、芳香族ジカルボン酸、芳香族ジオール、芳香族アミノカルボン酸、芳香族オキシカルボン酸、芳香族オキシアミノ化合物及びこれらの誘導体から選ばれる二種以上の構成成分から組み合わせられるものが挙げられる。

【0031】

これらの熱液晶性高分子の中でも、熱伝導率の高い熱伝導性高分子成形体が容易に得られることから、好ましくは熱液晶性全芳香族ポリエステル(A)及び熱液晶性全芳香族ポリエステルアミド(B)のうち少なくとも一種、さらに好ましくは熱液晶性全芳香族ポリエステル(A)である。

【0032】

熱伝導性充填剤は、得られる熱伝導性高分子成形体に熱伝導性を付与するために配合され、上記の液晶性高分子の熱伝導率(λ_1)よりも高い熱伝導率(λ_2)を少なくとも一方向に有するものである。また、本実施形態における熱伝導性充填剤は磁気異方性を有し、磁場中に静置されると一定方向に配向することができるものである。この熱伝導性充填剤は、磁化率(χ)が負の値を示す反磁性を有することが好ましく、磁場による配向方向は、磁場を印加した方向の磁化率($\chi_{//}$)とその垂直方向の磁化率(χ_{\perp})の差である異方性磁化率($\chi_a = |\chi_{//} - \chi_{\perp}|$)の大きさに依存する。そして、熱伝導性充填剤はこの異方性磁化率(χ_a)は大きいほど、磁場配向し易くなる性質を有している。この異方性磁化率(χ_a)

χ_a) は熱伝導性充填剤の構造と形状に依存し、熱伝導性充填剤の異方性磁化率 (χ_a) は好ましくは $10^{-9} \sim 10^{-1}$ 、さらに好ましくは $10^{-8} \sim 10^{-1}$ である。この異方性磁化率が 10^{-9} 未満であると、熱伝導性充填剤の配向制御が困難となるおそれがある。一方、 10^{-1} を超える熱伝導性充填剤は入手するのが困難である。

【0033】

本実施形態における熱伝導性充填剤の具体例としては、炭素繊維、グラファイト、金属窒化物、金属炭化物、金属酸化物、黒鉛化炭素繊維、天然黒鉛、球状黒鉛粒子、メソカーボンマイクロビーズ、ウィスカー状カーボン、マイクロコイル状カーボン、ナノ構造充填剤等が挙げられる。

【0034】

金属窒化物としては窒化ホウ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム等、金属炭化物としては炭化ケイ素等が挙げられる。金属酸化物としては、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化ケイ素、酸化亜鉛等が挙げられる。炭素繊維としては、ポリアクリロニトリル (PAN) 系炭素繊維、メソフェーズピッチ (ピッチ) 系炭素繊維、気相成長法によって得られる炭素繊維等が挙げられる。ナノ構造充填剤としては、カーボンナノコイル、カーボンナノチューブ、カーボンナノホーン等が挙げられる。

【0035】

熱伝導性充填剤の配合量は、液晶性高分子 100 重量部に対して、5～800 重量部、好ましくは 30～400 重量部、さらに好ましくは 50～250 重量部である。この配合量が 5 重量部未満であると、熱伝導性高分子成形体の熱伝導性が不十分となる。一方、800 重量部を超えて配合すると、熱伝導性組成物の粘度が増大し、熱液晶性高分子に熱伝導性充填剤を均一に分散させることが困難となる。従って、熱伝導性充填剤を磁場配向させることが困難となるとともに、得られる熱伝導性高分子成形体に気泡が混入する等の不具合が生じる。

【0036】

ここで、液晶性高分子又は液晶性高分子に磁場を印加せず成形した液晶性高分子成形体の熱伝導率 (λ_1) は、高くても $0.5 \text{ W} / (\text{m} \cdot \text{K})$ 程度である。こ

これらの熱伝導性充填剤における少なくとも一方向の熱伝導率 (λ_2) は、液晶性高分子の熱伝導率 (λ_1) よりも高いものであって、好ましくは $20 \sim 2000 \text{ W} / (\text{m} \cdot \text{K})$ 、さらに好ましくは $200 \sim 2000 \text{ W} / (\text{m} \cdot \text{K})$ である。この熱伝導率 (λ_2) が $20 \text{ W} / (\text{m} \cdot \text{K})$ 未満であると、熱伝導性高分子成形体の熱伝導性を十分に向上できないおそれがある。一方、 $2000 \text{ W} / (\text{m} \cdot \text{K})$ を超える熱伝導性充填剤は入手するのが困難である。

【0037】

熱伝導性充填剤の形状や粒径、凝集度合い、これらの分布等については特に限定されない。また、板状、鱗片状、球状の熱伝導性充填剤を配合する場合、その粒径は好ましくは $0.01 \sim 200 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $0.5 \sim 150 \mu\text{m}$ の範囲が好ましく、さらに好ましくは $1.0 \sim 100 \mu\text{m}$ である。この粒径が $0.01 \mu\text{m}$ 未満、又は $200 \mu\text{m}$ を超えると、液晶性高分子に対する熱伝導性充填剤の分散性が低下するとともに、少量配合するだけでも熱伝導性組成物の粘度が上昇して磁場による配向が困難となるおそれがある。また、繊維状、ウィスカー状の熱伝導性充填剤においては、その長さは好ましくは $0.1 \sim 250 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $50 \sim 200 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $100 \sim 150 \mu\text{m}$ である。この長さが $0.1 \mu\text{m}$ より短いと、熱伝導性組成物の粘度が上昇し、磁場による配向が困難となるおそれがある。一方、 $200 \mu\text{m}$ より長いと、繊維やウィスカー同士が交絡し易く、磁場によって配向させることが困難となるおそれがある。

【0038】

これらの熱伝導性充填剤の中でも、熱伝導率 (λ_2) に優れることから、好ましくは炭素繊維、グラファイト、窒化ホウ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、炭化ケイ素及び酸化アルミニウムより選ばれる少なくとも一種、さらに好ましくは炭素繊維及びグラファイトより選ばれる少なくとも一種である。

【0039】

炭素繊維及びグラファイトにおける少なくとも一方向の熱伝導率 (λ_2) は、好ましくは $200 \sim 2000 \text{ W} / (\text{m} \cdot \text{K})$ 、より好ましくは $400 \sim 2000 \text{ W} / (\text{m} \cdot \text{K})$ 、さらに好ましくは $1000 \sim 2000 \text{ W} / (\text{m} \cdot \text{K})$ である。この熱伝導率 (λ_2) が $20 \text{ W} / (\text{m} \cdot \text{K})$ 未満であると、熱伝導性高分子成形

体の熱伝導性をより十分に向上できないおそれがある。一方、 $2000\text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ を超える熱伝導性充填剤は入手するのが困難である。

【0040】

炭素繊維及びグラファイトは、繊維軸に垂直な方向又はc軸方向の熱伝導率 ($30\text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$) と比較し、繊維軸方向又はc軸に垂直な方向の熱伝導率 (例えば、 $1000\text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$) が非常に高い。また、例えばピッチ系炭素繊維の異方性磁化率 (χ_a) は 10^{-4} であり、炭素繊維及びグラファイトの異方性磁化率 (χ_a) は他の熱伝導性充填剤に比べて高いため、配向させ易い。そして、炭素繊維及びグラファイトは、熱伝導方向に磁場配向させた場合、熱伝導率の高い繊維軸方向又はc軸に垂直な方向を熱伝導方向と平行に配向させることができる。

【0041】

炭素繊維は、その種類や大きさ、形状については特に限定されないが、繊維軸方向の熱伝導率が高いことから、好ましくはピッチ系炭素繊維及びポリイミド繊維又はポリベンザゾール繊維を黒鉛化して得られる炭素繊維、さらに好ましくはピッチ系炭素繊維である。

【0042】

ピッチ系炭素繊維は、原料の溶融紡糸、不融化、炭化などの処理工程後に $2000 \sim 3000^\circ\text{C}$ 又は 3000°C を超える高温で熱処理することによって得られ、グラファイト構造が発達し、黒鉛化されているものである。これらの炭素繊維の繊維長さ方向の熱伝導率は、好ましくは $200 \sim 2000\text{ W}/\text{mK}$ 、より好ましくは $400 \sim 2000\text{ W}/\text{mK}$ 、さらに好ましくは $1000 \sim 2000\text{ W}/\text{mK}$ である。これらの炭素繊維の直径は $2\text{ }\mu\text{m} \sim 30\text{ }\mu\text{m}$ 程度、短繊維の場合、その繊維長は $5\text{ }\mu\text{m} \sim 500\text{ }\mu\text{m}$ 程度のものが用いられる。

【0043】

また、窒化ホウ素の中でも、鱗片状又は板状の六方晶窒化ホウ素が好ましい。この六方晶窒化ホウ素は、粒子の厚さ方向における熱伝導率 ($3\text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$) と比較し、粒子の面内方向における熱伝導率 ($57\text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$) が高く、異方性磁化率 (χ_a) が 10^{-5} である。そして、この六方晶窒化ホウ素は熱伝導

方向に磁場配向させた場合、熱伝導率の高い面内方向を熱伝導方向と平行に配向させることができる。

【 0 0 4 4 】

磁気異方性を有し、磁場配向する酸化アルミニウムとしては、板状 α アルミナ等の板状の酸化アルミニウムが挙げられる。球状 α アルミナ等の球状の酸化アルミニウムは磁気異方性を有しないため、磁場配向しない。よって、球状の酸化アルミニウムは本実施形態における酸化アルミニウムには含まれない。

【 0 0 4 5 】

ナノ構造充填剤は、嵩高いため配合量の増加に伴って熱伝導性組成物の粘度が上昇し易い傾向がある。しかし、ナノ構造充填剤は他の熱伝導性充填剤と併用して少量配合すると、磁場配向によって熱伝導方向に十分な熱伝導性を有する熱伝導性高分子成形体を得ることができる。

【 0 0 4 6 】

得られる熱伝導性高分子成形体を電気絶縁性が要求される用途に用いる場合、これらの熱伝導性充填剤の中でも、電気絶縁性を有する熱伝導性充填剤を配合することが好ましい。電気絶縁性を有する熱伝導性充填剤としては、上記の金属酸化物、金属窒化物、金属炭化物等が挙げられる。

【 0 0 4 7 】

液晶性高分子としてライオトロピック液晶性高分子を配合する場合は、ライオトロピック液晶性高分子を溶解させるための溶媒が配合される。溶媒としては、ライオトロピック液晶性高分子が溶解するものであれば特に限定されないが、溶媒は熱伝導性充填剤の分散媒にもなるため、熱伝導性充填剤の分散性を考慮して選択することが好ましい。溶媒の配合量は、ライオトロピック液晶性高分子が液晶状態を発現する量に設定される。

【 0 0 4 8 】

熱伝導性組成物には、耐熱性、成形加工性等を改良するためにその他の高分子を少量配合することができる。その他の高分子としては、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリアリレート、ポリエステルカーボネート、ポリカーボネート、ポリイミド、ポリエーテ

ルイミド、ポリアミド、ポリウレタン、ポリエステル系エラストマー、ポリスチレン、アクリル系高分子、ポリサルホン、シリコン系高分子、ハロゲン系高分子、オレフィン系高分子等が挙げられる。

【 0 0 4 9 】

熱伝導性組成物には、必要に応じてガラス繊維等の補強材、顔料、染料、蛍光増白剤、分散剤、安定剤、紫外線吸収剤、エネルギー消光剤、帯電防止剤、酸化防止剤、難燃剤、熱安定剤、滑剤、可塑剤、溶剤等を少量添加することも可能である。

【 0 0 5 0 】

熱伝導性組成物は、各成分を押出機、ニーダー等の混練装置によって混練することによって得られる。また、熱液晶性高分子としてライオトロピック液晶性高分子を配合する場合は、攪拌装置によって溶媒中にライオトロピック液晶性高分子を溶解させるとともに、溶媒中に熱伝導性充填剤を分散させることによって熱伝導性組成物は得られる。

【 0 0 5 1 】

次に、熱伝導性高分子成形体について説明する。

熱伝導性高分子成形体は、前記熱伝導性組成物を用いて成形することによって得られ、熱伝導方向に液晶性高分子及び熱伝導性充填剤が磁場配向されているものである。

【 0 0 5 2 】

熱伝導性組成物に液晶性高分子として熱液晶性高分子を配合した場合は、成形装置の成形凹部に収容された熱伝導性組成物に含有される熱液晶性高分子を加熱溶融させ、液晶状態に相転移させる。次に、磁場発生手段によって熱伝導方向に磁場を印加する。そして、熱液晶性高分子及び熱伝導性充填剤は磁場配向され、熱液晶性高分子の剛直な分子鎖の方向及び熱伝導性充填剤の高い熱伝導率 (λ_2) を有する方向を磁力線と平行方向に配向制御させ。その後、冷却し、液晶性高分子を固体に相転移させることによって熱伝導性高分子成形体が得られる。

【 0 0 5 3 】

熱伝導性組成物に液晶性高分子としてライオトロピック液晶性高分子を配合し

た場合は、成形装置の成形凹部にライオトロピック液晶性高分子の溶液を収容するとともに磁場発生手段によって磁場を印加する。そして、液晶性高分子の剛直な分子鎖の方向及び熱伝導性充填剤の高い熱伝導率 (λ_2) を有する方向を磁力線と平行方向に配向制御させた後、揮発等によって溶媒を除去させる。そして、液晶性高分子を液晶状態から固体状態に相転移させることによって、熱伝導性高分子成形体を得ることができる。

【 0 0 5 4 】

磁場発生手段としては、永久磁石、電磁石、超電導磁石、コイル等が挙げられる。そして、磁場発生手段によって発生する磁場の磁束密度が高いほど、液晶性高分子及び熱伝導性充填剤を配向させることができ、より高い熱伝導率を有する熱伝導性高分子成形体を得ることができる。磁場の磁束密度は、好ましくは 1 ～ 2 0 テスラ (T)、さらに好ましくは 2 ～ 2 0 T、最も好ましくは 3 ～ 2 0 T である。この磁束密度が 1 T 未満であると、熱液晶性高分子の剛直な分子鎖及び熱伝導性充填剤を十分に配向させることができないおそれがあり、高い熱伝導率を有する熱伝導性高分子成形体を得られにくい。一方、磁束密度が 2 0 T を超える磁場は、実用上得られにくい。この磁束密度の範囲が 3 ～ 2 0 T であると、高い熱伝導率を有する熱伝導性高分子成形体を得られるとともに、実用的である。

【 0 0 5 5 】

成形装置としては、射出成形装置、押出成形装置、プレス成形装置等の合成樹脂を成形する装置を用いることができる。熱伝導性組成物は、シート状、フィルム状、ブロック状、粒状、繊維状等の様々な形状の熱伝導性高分子成形体に成形することができる。この熱伝導性高分子成形体は、プリント配線基板、半導体パッケージ、筐体、ヒートパイプ、放熱板、熱拡散板等の放熱部材に適用することができ、各種電子部品で発生する熱を伝導伝熱させ、電子機器の外部に放熱することができるものである。

【 0 0 5 6 】

熱伝導性高分子成形体の熱伝導率 (λ) は、液晶性高分子及び熱伝導性充填剤が一定方向に配向していることによって、その分子鎖方向に極めて大きくなるものであって、好ましくは 2. 2 ～ 1 0 0 W / (m · K)、さらに好ましくは 3.

0～50W/(m・K)、最も好ましくは3.5～30W/(m・K)である。この熱伝導率(λ)が2.2W/(m・K)未満であると、電子部品から発生する熱を効果的に外部へ伝えることが困難となるおそれがある。一方、100W/(m・K)を超えると、成形が困難となるおそれがある。

【0057】

熱伝導性高分子成形体を電気絶縁性が要求される用途に用いる場合、その体積抵抗率は、好ましくは $1 \times 10^6 \sim 1 \times 10^{20} \Omega \cdot \text{cm}$ 、さらに好ましくは $1 \times 10^8 \sim 1 \times 10^{18} \Omega \cdot \text{cm}$ 、最も好ましくは $1 \times 10^{12} \sim 1 \times 10^{18} \Omega \cdot \text{cm}$ である。この体積抵抗率が $1 \times 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ 未満であると、十分な電気絶縁性が得られないおそれがある。一方、 $1 \times 10^{20} \Omega \cdot \text{cm}$ を超える熱伝導性高分子成形体を得るのは、液晶性高分子の物性を考慮すると困難である。

【0058】

この熱伝導性高分子成形体をシート状に成形する場合、その厚さは好ましくは0.02～10mm、さらに好ましくは0.1～7mm、最も好ましくは0.2～3mmである。この厚さが0.02mm未満であると、機械的強度が十分に得られないおそれがある。一方、10mmを超えると、電子機器等の適用物に対する軽量化を損ねるおそれがある。また、この厚さは厚さ方向の熱抵抗を小さくできるため薄い方が好ましく、0.02～3mmであると、厚さ方向の熱抵抗を小さくすることができるとともに、機械的強度が得られやすい。シート状又はフィルム状の熱伝導性高分子成形体は、回路基板材料、半導体パッケージ用等の放熱シート又はフィルム等に適用することができる。

【0059】

続いて、熱伝導性高分子成形体の製造方法について図1～図3に基づいて詳細に説明する。本実施形態における熱伝導性組成物は、液晶性高分子として熱液晶性高分子を配合したものである。図1に示すように、得られる熱伝導性高分子成形体としてのシート状の熱伝導性シート11は、プリント配線基板、放熱シート等の放熱部材として電子機器等に適用することができるものである。

【0060】

まず、熱伝導性シート11の厚さ方向(図1におけるZ軸方向)に熱液晶性高

分子の剛直な分子鎖の方向及び熱伝導性充填剤の高い熱伝導率 (λ_2) を有する方向を配向させる場合について説明する。

【 0 0 6 1 】

図 2 に示すように、金型 1 2 a の内部には、キャビティ 1 3 a がシート状に形成されている。また、金型 1 2 a の上下には磁場発生手段としての一对の永久磁石 1 4 a が配設され、永久磁石 1 4 a によって発生する磁場の磁力線 M 1 は、キャビティ 1 3 a の厚さ方向に一致するようになっている。

【 0 0 6 2 】

まず、このキャビティ 1 3 a に熱伝導性組成物 1 5 を充填させる。金型 1 2 a には図示しない加熱装置が備えられ、この加熱装置によって熱伝導性組成物 1 5 に含有される熱液晶性高分子は溶融状態に維持されるとともに、液晶状態に相転移される。次に、永久磁石 1 4 a によって、熱液晶性高分子が液晶状態にある熱伝導性組成物 1 5 に対して磁場を印加する。このとき、磁力線 M 1 は、シート状の熱伝導性組成物 1 5 の厚さ方向に一致するため、熱液晶性高分子の剛直な分子鎖の方向及び熱伝導性充填剤の高い熱伝導率 (λ_2) を有する方向をシート状の熱伝導性組成物 1 5 の厚さ方向に配向することができる。この配向状態で熱伝導性組成物 1 5 を冷却することによって熱液晶性高分子を固体状態に相転移させ、金型 1 2 a から取り出す。すると、熱液晶性高分子の剛直な分子鎖の方向及び熱伝導性充填剤の高い熱伝導率 (λ_2) を有する方向が厚さ方向に配向した熱伝導性シート 1 1 を得ることができる。この熱伝導性シート 1 1 の厚さ方向の熱伝導率 (λ_T) は、上記熱伝導率 (λ) の理由によって、好ましくは 2. 2 ~ 1 0 0 W / (m · K) 、さらに好ましくは 3. 0 ~ 5 0 W / (m · K) 、最も好ましくは 3. 5 ~ 3 0 W / (m · K) である。この熱伝導性シート 1 1 は厚さ方向の熱伝導性が要求される回路基板材料、半導体パッケージ用の放熱シート等に適用することができる。

【 0 0 6 3 】

次に、熱伝導性シート 1 1 の面内方向 (図 1 における X 軸方向、Y 軸方向等) に熱液晶性高分子の剛直な分子鎖を配向させる場合について説明する。

図 3 に示すように、金型 1 2 b に形成されるキャビティ 1 3 b の面内方向に磁

力線M2が一致するように、一对の永久磁石14bを金型12bの両側方に対向させて配設する。そして、永久磁石14bによって、キャビティ13bの内部に充填された熱液晶性高分子が液晶状態にある熱伝導性組成物15に磁場を印加する。このとき、磁力線M2はシート状の熱伝導性組成物15の面内方向に一致するため、熱液晶性高分子の剛直な分子鎖の方向及び熱伝導性充填剤の高い熱伝導率(λ_2)を有する方向を熱伝導性組成物15の面内方向に配向することができる。この配向状態で熱伝導性組成物15を冷却固化させ、金型12bから取り出すと、熱液晶性高分子の剛直な分子鎖及び熱伝導性充填剤の高い熱伝導率(λ_2)を有する方向が面内方向に配向した熱伝導性シート11を得ることができる。この熱伝導性シート11の面内方向の熱伝導率(λ_p)は、上記熱伝導率(λ)の理由によって、好ましくは2.2~100W/(m・K)、さらに好ましくは3.0~50W/(m・K)、最も好ましくは3.5~30W/(m・K)である。この熱伝導性シート11は面内方向に熱伝導性が要求される回路基板材料、半導体パッケージ用の放熱シート等に適用することができる。

【0064】

さて、熱伝導性高分子成形体を製造する場合、熱伝導性組成物に含有する液晶性高分子は液晶状態に相転移され、熱伝導性組成物には熱伝導方向に合わせて磁場が印加される。次に熱伝導性組成物は固体状態に相転移され、熱伝導性高分子成形体は得られる。得られた熱伝導性高分子成形体は、回路基板材料等に適用される。このとき、熱伝導性組成物には熱伝導性充填剤が配合され、液晶性高分子の分子鎖の方向及び熱伝導性充填剤の高い熱伝導率(λ_2)を有する方向は、熱伝導方向に磁場配向されている。このとき、液晶性高分子の分子鎖は、一般に細長く、扁平で、分子の長鎖に沿って剛直であるため、その分子鎖方向に熱伝導性高分子成形体の熱伝導性を向上させることができる。また、熱伝導性充填剤の高い熱伝導率(λ_2)を有する方向に熱伝導性高分子成形体の熱伝導性を向上させることができる。

【0065】

本実施形態によって発揮される効果について、以下に記載する。

- この実施形態の熱伝導性高分子成形体においては、液晶性高分子100重

量部に対して、熱伝導性充填剤 5 ～ 8 0 0 重量部を配合してなる熱伝導性組成物から成形される。熱伝導性充填剤は、液晶性高分子の熱伝導率 (λ_1) よりも、高い熱伝導率 (λ_2) を少なくとも一方向に有している。また、熱伝導性充填剤は磁気異方性を有するものである。そして、液晶性高分子及び熱伝導性充填剤は、得られる熱伝導性高分子成形体の熱伝導方向に磁場配向されている。このとき、液晶性高分子の分子鎖は、一般に細長く、扁平で、分子の長鎖に沿って剛直であるため、その分子鎖方向に熱伝導性高分子成形体の熱伝導性を向上させることができる。また、熱伝導性充填剤の高い熱伝導率 (λ_2) を有する方向に熱伝導性高分子成形体の熱伝導性を向上させることができる。従って、熱伝導性高分子成形体は、優れた熱伝導性を発揮することができる。

【 0 0 6 6 】

・ この実施形態の熱伝導性高分子成形体においては、熱液晶性高分子が (A) 熱液晶性全芳香族ポリエステル及び (B) 熱液晶性全芳香族ポリエステルアミドのうち少なくとも一種である。このように構成した場合、光学的異方性溶融相を容易に発現させることができる。また、これらの熱液晶性高分子の成形加工性は良好であって、種々の形状に容易に成形することができる。従って、熱伝導率 (λ) の高い熱伝導性高分子成形体を容易に得ることができる。

【 0 0 6 7 】

・ この実施形態の熱伝導性高分子成形体においては、熱伝導性充填剤が、炭素繊維、グラファイト、窒化ホウ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、炭化ケイ素及び酸化アルミニウムより選ばれる少なくとも一種である。これらの熱伝導性充填剤は高い熱伝導率 (λ_2) を有するため、熱伝導性高分子成形体により優れた熱伝導性を発揮させることができる。

【 0 0 6 8 】

・ この実施形態の熱伝導性高分子成形体においては、熱伝導性充填剤は、炭素繊維及びグラファイトより選ばれる少なくとも一種であり、それらの少なくとも一方向の熱伝導率は、2 0 0 ～ 2 0 0 0 W / (m · K) である。これらの熱伝導性充填剤は高い熱伝導率 (λ_2) を有し、磁気異方性が高いため、熱伝導性高分子成形体にさらに優れた熱伝導性を発揮させることができる。

【 0 0 6 9 】

・ この実施形態の熱伝導性高分子成形体においては、熱伝導性シートとしてシート状に成形され、熱伝導シートの厚さ方向に液晶性高分子及び熱伝導性充填剤が磁場配向されている。このように構成した場合、回路基板材料、放熱シート等のシート状でその厚さ方向に高い熱伝導性が要求される用途に容易に適用することができる。

【 0 0 7 0 】

・ 従来、液晶性高分子、熱伝導性充填剤等を配向させるには、流動場、せん断場等を利用することがあった。この実施形態の熱伝導性高分子成形体においては、磁場の磁力線を制御することによって、熱液晶性高分子及び熱伝導性充填剤を配向させている。従って、三次元形状をなす熱伝導性高分子成形体において、その熱伝導方向に液晶性高分子及び熱伝導性充填剤を容易に配向させることができ、最も実用的である。

【 0 0 7 1 】

・ この実施形態の熱伝導性高分子成形体の製造方法においては、液晶性高分子が液晶状態に相転移され、磁場が印加されることによって液晶性高分子及び熱伝導性充填剤を熱伝導方向に配向させている。その後、液晶性高分子を固体状態に相転移させることによって熱伝導性高分子成形体を製造している。この製造方法によると、優れた熱伝導性を発揮することができる熱伝導性高分子成形体を容易に得ることができる。

【 0 0 7 2 】

・ この実施形態の熱伝導性高分子成形体の製造方法においては、熱伝導性組成物をシート状に成形した後、前記液晶性高分子が液晶状態に相転移され、磁場が印加されることによって液晶性高分子及び熱伝導性充填剤を熱伝導方向に配向させている。その後、前記液晶性高分子を固体状態に相転移させることによって熱伝導性高分子成形体を製造している。この製造方法によると、シート状をなし、その厚さ方向、面内方向等に優れた熱伝導性を発揮することができる熱伝導性高分子成形体を容易に得ることができる。

【 0 0 7 3 】

【実施例】

次に、実施例及び比較例を挙げて前記実施形態をさらに具体的に説明する。

(実施例 1)

液晶性高分子として熱液晶性全芳香族ポリエステル（ユニチカ株式会社製、ロッドラン LC 5000、構成単位：テレフタル酸と 4-ヒドロキシ安息香酸とエチレングリコール）100 重量部に対し、熱伝導性充填剤として黒鉛化された炭素繊維（株式会社ペトカマテリアルズ製、熱伝導率 $1000 \text{ W} / (\text{m} \cdot \text{K})$ ）50 重量部を配合した。さらに、熱液晶性全芳香族ポリエステル 100 重量部に対し、酸化アルミニウム球状粉末（昭和電工株式会社製）40 重量部を配合して混合物を調製した。この混合物を押出機にて熔融混練し、ペレット状の熱伝導性組成物を作製した。この熱伝導性組成物を脱湿乾燥し、射出成形によって、縦 50 mm×横 50 mm×厚み 2 mm のシート状成形体を作製した。このシート状成形体を、温度 340℃ に加熱した金型のキャビティに入れ、超電導磁石によって磁束密度 10 T の磁場中で熔融させて熱液晶性全芳香族ポリエステルの液晶状態に相転移させた。このとき、磁力線の方法はシート状成形体の厚さ方向とした。同磁場中で 20 分間保持した後、室温まで冷却することによって熱液晶性全芳香族ポリエステルの固体状態に相転移させて熱伝導性高分子成形体としての厚さ 2 mm の熱伝導性シートを作製した。

(実施例 2～実施例 4)

実施例 1 と同一の熱液晶性全芳香族ポリエステルと表 1 に記載した所定の熱伝導性充填剤及び実施例 1 と同一の酸化アルミニウム球状粉末を配合した混合物を調製した。得られた混合物を実施例 1 と同様に射出成形し、シート状成形体を作製した。このシート状成形体を実施例 1 と同様にして熱伝導性高分子成形体としての厚さ 2 mm の熱伝導性シートを作製した。

(実施例 5)

実施例 1 と同一の熱液晶性全芳香族ポリエステルと表 1 に記載した所定の熱伝導性充填剤及び実施例 1 と同一の酸化アルミニウム球状粉末を配合した混合物を調製した。得られた混合物を実施例 1 と同様に射出成形し、シート状成形体を作製した。このシート状成形体から磁束密度を 15 T とした以外は実施例 1 と同様

にして、熱伝導性高分子成形体としての厚さ 2 mm の熱伝導性シートを作製した。

(比較例 1 及び比較例 2)

実施例 1 と同一の熱液晶性全芳香族ポリエステルと表 2 に記載した所定の熱伝導性充填剤及び実施例 1 と同一の酸化アルミニウム球状粉末を配合した混合物を調製した。この混合物から実施例 1 と同様にしてシート状の成形体を作製した。このシート状成形体を、温度 3 4 0 °C に加熱したキャビティに入れて磁場を印加せずに溶融させて熱液晶性全芳香族ポリエステルを液晶状態に相転移させた。この液晶状態で 2 0 分間保持した後、室温まで冷却固化させて厚さ 2 mm の高分子シートを作製した。

(比較例 3)

ポリカーボネート（三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社製）1 0 0 重量部に対して、熱伝導性充填剤として実施例 1 と同一の炭素繊維 1 0 0 重量部と、実施例 1 と同一の酸化アルミニウム球状粉末 4 0 重量部を配合した混合物を調製した。この混合物から実施例 1 と同様にしてシート状の成形体を作製した。このシート状成形体から実施例 1 と同様に磁場を印加して、室温まで冷却固化させることによって厚さ 2 mm の高分子シートを作製した。

【0 0 7 4】

実施例 1 ～ 5 及び比較例 1 ～ 3 で得られた熱伝導性シート及び高分子シートの熱伝導率をレーザーフラッシュ法によって測定した熱拡散率に密度と比熱を乗じて求めた。また、得られた熱伝導性シート及び高分子シートに含まれる液晶性高分子及び熱伝導性充填剤の配向の有無を、走査型電子顕微鏡による観察及び X 線回折測定により判定した。

【0 0 7 5】

実施例 1 ～ 5 の結果を表 1、比較例 1 ～ 3 の結果を表 2 に示す。なお、表中の配向の有無は、液晶性高分子及び熱伝導性充填剤の双方において、熱伝導方向（シートの厚さ方向）への配向が確認された場合を「有」、配向が確認されなかった場合を「無」と記載した。

【0 0 7 6】

【表 1】

		実施例				
		1	2	3	4	5
配合 (重量部)	液晶性高分子	100	100	100	100	100
	ポリカーボネート	0	0	0	0	0
	炭素繊維	50	100	0	0	100
	窒化ホウ素	0	0	50	100	0
	酸化アルミニウム	40	40	40	40	40
磁束密度 [T]		10	10	10	10	15
配向の有無		有	有	有	有	有
熱伝導率 [W/(m·K)]		2.78	7.50	2.41	3.05	9.83

【0 0 7 7】

【表 2】

		比較例		
		1	2	3
配合 (重量部)	液晶性高分子	100	100	0
	ポリカーボネート	0	0	100
	炭素繊維	100	0	100
	窒化ホウ素	0	100	0
	酸化アルミニウム	40	40	40
磁束密度 [T]		0	0	10
配向の有無		無	無	無
熱伝導率 [W/(m·K)]		2.01	1.90	1.98

表 1 に示すように、実施例 1 ～ 5 の熱伝導性シートは、液晶性高分子及び熱伝導性充填剤の配向が確認されるとともに熱伝導率 (λ) がいずれも $2.2 \text{ W/(m} \cdot \text{K)}$ 以上であり、優れた熱伝導性を有している。また、実施例 2 と実施例 5 を比較すると、同一の配合でも磁束密度を高く設定した方がより優れた熱伝導性を有した熱伝導性シートが得られることがわかる。

【0 0 7 8】

表 2 に示すように、比較例 1 及び比較例 2 の高分子シートは、磁場を印加せずに作製したため、液晶性高分子及び熱伝導性充填剤の配向は確認されず、熱伝導率 (λ) は $2.2 \text{ W} / (\text{m} \cdot \text{K})$ 未満であり、十分な熱伝導性が得られていない。また、比較例 3 の高分子シートは磁場を印加して作製したため、熱伝導性充填剤の配向は確認されたが、液晶性高分子を配合せずに液晶性を有しないポリカーボネートを配合したため、ポリカーボネートの配向は確認されず、十分な熱伝導性が得られていない。

【 0 0 7 9 】

なお、前記実施形態を次のように変更して構成することもできる。

- ・ 前記熱伝導性充填剤は、磁気異方性を有するものである。しかし、熱伝導性を向上するために、磁気異方性を有しない、又は有したとしても磁場配向が困難な充填剤を熱伝導性組成物に配合してもよい。磁気異方性を有しない、又は有したとしても磁場配向が困難な充填剤としては、水酸化アルミニウム等が挙げられる。

【 0 0 8 0 】

- ・ 前記磁場発生手段は、金型を挟むように一対配設されているが、一方の磁場発生手段を省略してもよい。

- ・ 前記磁場発生手段は、S 極と N 極とが互いに対向するように一対配設されているが、S 極同士又は N 極同士が対向するように配設してもよい。つまり、熱伝導方向に液晶性高分子が磁場配向するように磁力線の向きを調整して磁場を印加すればよい。

【 0 0 8 1 】

- ・ 前記磁力線は、直線状であるが、曲線状でもよい。また、前記磁場発生手段は磁力線が一方向に延びるように配設されているが、磁力線が二方向以上に延びるように磁場発生手段を配設してもよい。

【 0 0 8 2 】

- ・ 前記熱伝導性シートの少なくとも一面に、適用物に貼り合わせるための粘着層を設けてもよい。この構成によると、熱伝導性シートの粘着層を適用物に貼り合わせることによって熱伝導性シートを適用物に容易に固定することができる

【 0 0 8 3 】

次に、上記実施形態から把握できる技術的思想について以下に記載する。

(1) 請求項 1 から請求項 5 のいずれか一項に記載の熱伝導性高分子成形体の製造方法において、前記熱伝導性組成物を成形する際、前記液晶性高分子の加熱溶融又は溶媒に対する溶解によって液晶性高分子を液晶状態に相転移して、該液晶性高分子に磁場を印加することによって前記液晶性高分子及び熱伝導性充填剤を熱伝導方向に配向させた後、冷却又は溶媒の除去によって前記液晶性高分子を固体状態に相転移させたことを特徴とする熱伝導性高分子成形体の製造方法。

【 0 0 8 4 】

(2) 前記液晶性高分子は熱液晶性高分子である請求項 1 から請求項 5 のいずれか一項に記載の熱伝導性高分子成形体。このように構成した場合、加熱成形によって容易に成形加工することができるため、熱伝導性高分子成形体を容易に得ることができる。

【 0 0 8 5 】

(3) 請求項 1 から請求項 5 のいずれか一項に記載の熱伝導性高分子成形体の製造方法において、前記液晶性高分子は熱液晶性高分子であり、該熱液晶性高分子を加熱溶融させて磁場を印加して、熱液晶性高分子を配向させた後、冷却固化させることを特徴とする熱伝導性高分子成形体の製造方法。この製造方法によると、熱液晶性高分子を容易に磁場配向させることができ、優れた熱伝導性を発揮することができる熱伝導性高分子成形体を容易に得ることができる。

【 0 0 8 6 】

(4) 前記熱伝導性充填剤は、さらに電気絶縁性を有するものである請求項 1 から請求項 3、請求項 5 及び上記 (2) のいずれか一項に記載の熱伝導性高分子成形体。このように構成した場合、電気絶縁性を有する用途に適用することができる。

【 0 0 8 7 】

【発明の効果】

この発明は、以上のように構成されているため、次のような効果を奏する。

請求項 1 に記載の発明の熱伝導性高分子成形体によれば、優れた熱伝導性を発揮することができる。

【 0 0 8 8 】

請求項 2 に記載の発明の熱伝導性高分子成形体によれば、請求項 1 に記載の発明の効果に加え、熱伝導率の高い熱伝導性高分子成形体を容易に得ることができる。

【 0 0 8 9 】

請求項 3 に記載の発明の熱伝導性高分子成形体によれば、請求項 1 又は請求項 2 に記載の発明の効果に加え、より優れた熱伝導性を発揮することができる。

請求項 4 に記載の発明の熱伝導性高分子成形体によれば、請求項 1 から請求項 3 のいずれか一項に記載の発明の効果に加え、さらに優れた熱伝導性を発揮することができる。

【 0 0 9 0 】

請求項 5 に記載の発明の熱伝導性高分子成形体によれば、請求項 1 から請求項 4 のいずれか一項に記載の発明の効果に加え、シート状でその厚さ方向に高い熱伝導性が要求される用途に容易に適用することができる。

【 0 0 9 1 】

請求項 6 に記載の発明の熱伝導性高分子成形体の製造方法によれば、優れた熱伝導性を発揮することができる熱伝導性高分子成形体を容易に得ることができる。

【 0 0 9 2 】

請求項 7 に記載の発明の熱伝導性高分子成形体の製造方法によれば、シート状でその厚さ方向に高い熱伝導性を有する熱伝導性高分子成形体を容易に得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 実施の形態における熱伝導性高分子成形体を示す斜視図。

【図 2】 厚さ方向に高い熱伝導性を有する熱伝導性シートの製造方法を示す概念図。

【図 3】 面内方向に高い熱伝導性を有する熱伝導性シートの製造方法を示

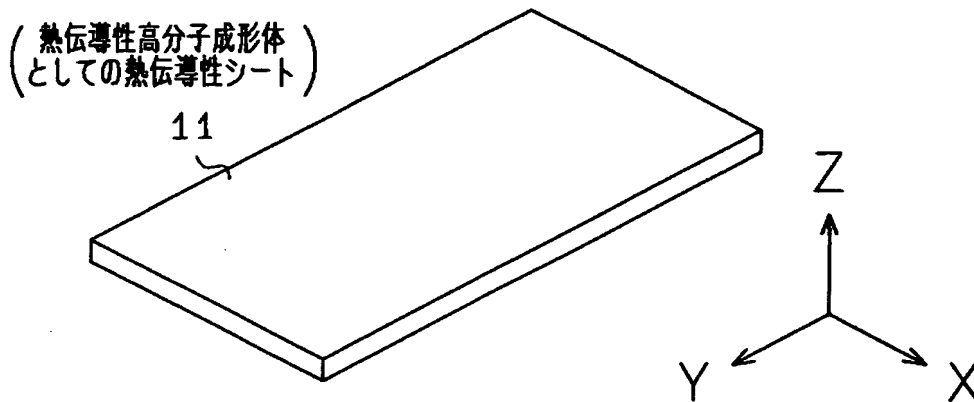
す概念図。

【符号の説明】

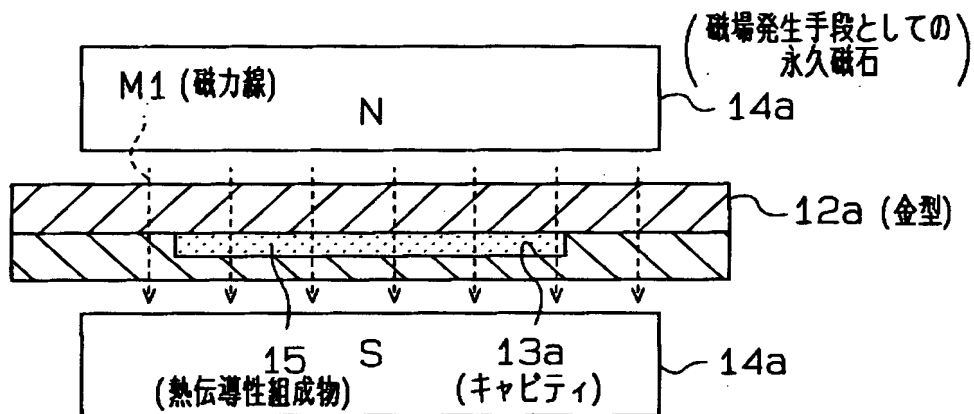
1 1 …熱伝導性高分子成形体としての熱伝導性シート、1 2 a、1 2 b …金型、1 3 a、1 3 b …キャビティ、1 4 a、1 4 b …磁場発生手段としての永久磁石、M 1、M 2 …磁力線、1 5 …熱伝導性組成物。

【書類名】 図面

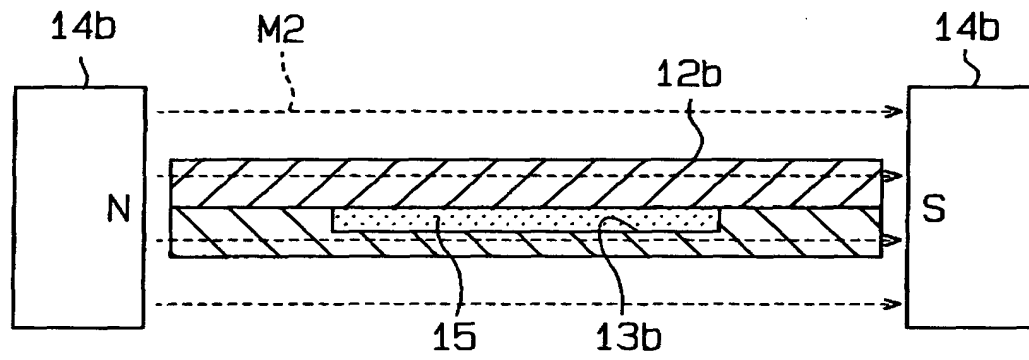
【図 1】



【図 2】



【図 3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 優れた熱伝導性を発揮することができる熱伝導性高分子成形体を提供する。

【解決手段】 熱伝導性高分子成形体は、液晶性高分子 1 0 0 重量部に対して、熱伝導性充填剤 5 ～ 8 0 0 重量部を配合してなる熱伝導性組成物から成形される。熱伝導性充填剤は、液晶性高分子の熱伝導率 (λ_1) よりも、高い熱伝導率 (λ_2) を少なくとも一方向に有している。また、熱伝導性充填剤は磁気異方性を有するものである。そして、液晶性高分子及び熱伝導性充填剤は、得られる熱伝導性高分子成形体の熱伝導方向に磁場配向されている。さらに、液晶性高分子は、(A) 熱液晶性全芳香族ポリエステル及び (B) 熱液晶性全芳香族ポリエステルアミドのうち少なくとも一種であることが好ましい。加えて、熱伝導性充填剤が、炭素繊維、グラファイト、窒化ホウ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、炭化ケイ素及び酸化アルミニウムより選ばれる少なくとも一種であることが好ましい。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000237020]

1. 変更年月日	1997年10月24日
[変更理由]	名称変更
住 所	東京都中央区日本橋本町4丁目8番16号
氏 名	ポリマテック株式会社